

# Request Form for Translation

U. S. Serial No. : 09/882,596  
Requester's Name: Peter Szekely  
Phone No. : 308-2460  
Fax No. : \_\_\_\_\_  
Office Location: CPB 4013  
Art Unit/Org. : 1714  
Group Director: Stone  
Is this for Board of Patent Appeals? No

Date of Request: 3/14/03  
Date Needed By: 4/15/03  
(Please do not write ASAP-indicate a specific date)

SPE Signature Required for RUSH:

## Document Identification (Select One):

**\*\* (Note: Please attach a complete, legible copy of the document to be translated to this form) \*\***

1. X Patent Document No. 19630598\*  
Language German  
Country Code DE  
Publication Date 2/5/98  
No. of Pages \_\_\_\_\_ (filled by STIC)

2. \_\_\_\_\_ Article Author \_\_\_\_\_  
Language \_\_\_\_\_  
Country \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_ Other Type of Document \_\_\_\_\_  
Country \_\_\_\_\_  
Language \_\_\_\_\_

## Document Delivery (Select Preference):

\_\_\_\_\_ Delivery to nearest EIC/Office Date: \_\_\_\_\_ (STIC Only)  
✓ Call for Pick-up Date: \_\_\_\_\_ (STIC Only)  
\_\_\_\_\_ Fax Back Date: \_\_\_\_\_ (STIC Only)

## STIC USE ONLY

### Copv/Search

Processor: \_\_\_\_\_  
Date assigned: \_\_\_\_\_  
Date filled: \_\_\_\_\_  
Equivalent found: \_\_\_\_\_ (Yes/No)

Doc. No.: \_\_\_\_\_  
Country: \_\_\_\_\_

Remarks: \_\_\_\_\_  
\_\_\_\_\_

### Translation

Date logged in: \_\_\_\_\_  
PTO estimated words: 1911  
Number of pages: 15  
In-House Translation Available: \_\_\_\_\_  
In-House: \_\_\_\_\_ Contractor: \_\_\_\_\_  
Translator: \_\_\_\_\_ Name: MC  
Assigned: \_\_\_\_\_ Priority: \_\_\_\_\_  
Returned: \_\_\_\_\_ Sent: \_\_\_\_\_  
Returned: 3/30/03

Translation Branch  
The world of foreign prior art to you.

Translations

PTO 2003-2345

S.T.I.C. Translations Branch

Equivalent  
Searching

Foreign Patents

Phone: 308-0881  
Fax: 308-0989  
Location: Crystal Plaza 3/4  
Room 2C01

To assist us in providing the most cost effective service, please answer these questions:

Will you accept an English Language Equivalent?

✓ (Yes/No)

Will you accept an English abstract?

N (Yes/No)

Would you like a consultation with a translator to review the document prior to having a complete written translation?

N (Yes/No)

Szekely, Peter

---

From: Releford, Carol  
Sent: Wednesday, March 26, 2003 12:19 PM  
To: Szekely, Peter  
Subject: 19630599.de



19630599.de.doc

i Peter,

Here's a copy of the Translation that you requested. For S/N 09/882,596. A paper copy of this Translation along with your copy of the Patent is ready for pick-up in the Translation Branch.

Thanks,

19630599.de

PTO 03-2345

Patent No. 196 30 599 A1

POLYETHYLENE TEREPHTHALATE PLATE WITH IMPROVED HYDROLYTIC  
STABILITY, A PROCESS FOR ITS MANUFACTURE, AND ITS USE

Dr. Ursula Murschall

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE  
WASHINGTON D.C. MARCH 2003  
TRANSLATED BY THE RALPH MCELROY TRANSLATION COMPANY

FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY  
 GERMAN PATENT OFFICE  
 PATENT NO. 196 30 599 A1  
 (Offenlegungsschrift)

Int. Cl. <sup>6</sup> :	C 08 L 67/02
	C 08 J 5/18
	C 08 J 3/20
	C 08 J 3/22
	C 08 J 11/00
	C 08 K 5/13
	C 08 K 5/18
	C 08 K 5/5313
	C 08 K 5/5317
	C 08 K 5/372
	C 08 K 5/29
	C 08 K 5/56

Filing No.:	196 30 599.3
Filing Date:	July 31, 1996
Date Laid-open to public inspection:	February 5, 1998

POLYETHYLENE TEREPHTHALATE PLATE WITH IMPROVED HYDROLYTIC  
 STABILITY, A PROCESS FOR ITS MANUFACTURE, AND ITS USE

[Polyethylenterephthalat-Platte mit verbesserter Hydrolysestabilität, Verfahren zur Herstellung  
 und Verwendung]

Inventor:	Dr. Ursula Murschall
Applicant:	Hoechst AG

The invention pertains to an amorphous, polyethylene terephthalate plate whose thickness is in the range from 0.8 to 20 mm. The plate contains at least one antioxidant as a stabilizer against hydrolysis and oxidation, and it excels by virtue of good mechanical properties along with improved hydrolytic stability. The invention also pertains to a process for the manufacture of this plate, and its use.

/2\*

---

\* [Numbers in the right margin represent pagination in the original foreign language text.]

Amorphous plates with a thickness of 1 to 20 mm, which can contain a crystallizable thermoplastic as the main component e.g. polyethylene terephthalate (PET), have been described by the applicant in several German patent applications (German Patent Application Nos. 195 19 579.5, 195 19 578.7, 195 19 577.9, 195 22 118.4, 195 22 120.6, 195 22 119.2, 195 28 336.8, 195 28 334.1, and 195 28 333.3).

Depending on the purpose for which they are used, these plates can be pigmented with coloring agents, such as dyes and pigments, in such a way that they are transparent or opacified. In addition, they can contain one or more UV stabilizers. The crystallizable thermoplastic e.g. polyethylene terephthalate, which is used for the manufacture of these plates, preferably exhibits a standard viscosity in the range from 800 to 6000. In addition, these plates can have a scratch-resistant coating on at least one side. This coating preferably contains silicon and/or an acrylic material (German Patent Application No. 196 25 534.1).

The plates excel in an overall way by virtue of their excellent optical and mechanical properties. Processes for the manufacture of these plates are also described in these patent applications.

It will be understood that the amorphous plates, which are described in these patent applications with PET as the crystallizable thermoplastic, can be used for the invention that is elucidated below so that, in regard to the present invention, reference is made explicitly to these patent applications and, as a result of citation, they constitute a component of the present patent application.

EP-A-0 471 528 describes a process for molding an object from a polyethylene terephthalate (PET) plate. The PET plate is heat treated on both sides in a deep drawing mold in the temperature range between the glass transition temperature and the melting point. The molded PET plate is taken out of the mold when the extent of crystallization of the molded PET plate is in the range from 25% to 50%. The PET plates that are disclosed in EP-A-0 471 528 have a thickness of 1 to 10 mm.

US 3,496,143 describes the vacuum deep drawing of a 3 mm thick PET plate whose [extent of] crystallization is said to be in the range from 5 to 25%. The crystallinity of the deep drawn molded object is greater than 25%.

Austrian Patent No. 304 086 describes a process for the manufacture of transparent molded objects using the deep drawing process, whereby use is made of a PET plate or foil as the starting material with a degree of crystallinity of less than 5%.

The plate or foil that is used as the starting material had been manufactured from a PET with a crystallization temperature of at least 160°C. It follows from this relatively high crystallization temperature that one is not hereby dealing with a PET homopolymer but, rather, with a glycol modified PET which is designated PET-G for short and which is a PET copolymer.

In contrast to pure PET, PET-G has an extremely low tendency to crystallization and is usually present in the amorphous state as a result of the additionally incorporated glycol units.

None of these plates are in any way stabilized against hydrolysis.

The problem for the present invention was to provide an amorphous plate with a thickness of 0.8 to 20 mm which exhibits, in particular, improved stability to hydrolysis and oxidation along with good mechanical properties and homogeneous optical properties.

Improved stability to hydrolysis and oxidation means that the plates exhibit no significant impairment of their mechanical properties - and, in particular, they experience no drastic lowering of the energy levels that are required to bring about damage - even as a result of storage at temperatures up to 50°C in combination with a relative atmospheric humidity of up to 95%, so that the plates can be used with advantage for exterior applications and critical interior applications.

A high impact strength along with a high breaking strength are included, in particular, among their good mechanical properties.

High surface gloss as well as the absence of surface defects, such as pimples, pinholes, and orange peel, are included, for example, among these homogeneous optical properties. High optical transmission, low turbidity, and high image acuity (clarity) are included among these homogeneous optical properties in the case of transparent plates, whereas homogeneous, stripe-free pigmentation is included among these in the case of opacified pigmented plates.

In addition to this, the plate in accordance with the invention should be capable of being recycled with no loss of mechanical properties in particular, and they should be combustible with difficulty in order that they can be used for interior applications and in the construction of trade fairs as well, for example.

This problem is solved by means of an amorphous plate with a thickness in the range from 0.8 to 20 mm that contains crystallizable polyethylene terephthalate as the main component, whereby this plate is characterized by the feature that it contains at least one antioxidant as a stabilizer against hydrolysis and oxidation.

The typical phenomena that arise via hydrolysis and oxidation are designated in a summarizing fashion as aging phenomena, and they depend in essence on the nature of the polymer and its use. On the one hand, they are aesthetic in nature, such as e.g. yellowing, loss of gloss, loss of transparency, and surface fissures, but, on the other hand, a loss of mechanical properties, such as brittle breakage, drastic lowering in the energy level required to bring about damage, and a drastic decrease in impact strength, take place in parallel to this, as a result of which, finally, the range of properties of the plate are impaired in such a way that they lose their ability to be used.

Basically, various possibilities present themselves for modifying oxidation and hydrolysis phenomena in a retarding manner:

/3

- structural modification of the thermoplastic
- blocking of terminal groups
- addition of antioxidants.

Antioxidants are chemical compounds that are capable of retarding oxidation and hydrolysis phenomena and the aging that results therefrom.

Suitable antioxidants for the polyethylene terephthalate plate in accordance with the invention can be classified as follows:

Group of additives	Class of substances
Primary antioxidants	Sterically hindered phenols and/or secondary aromatic amines
Secondary antioxidants	Phosphites and phosphonites thio-ethers, carbodiimides zinc dibutyldithiocarbamate

In a preferred form of embodiment, the amorphous, polyethylene terephthalate plate in accordance with the invention contains a phosphite and/or a phosphonite and/or a carbodiimide as the antioxidant.

Examples of antioxidants that are used in accordance with the invention are 2-[2,4,8,10-tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphopin-6-yl]-oxy)-ethyl]ethanamine and tris-(2,4-di-tert.-butylphenyl) phosphite.

The antioxidant is usually present at a concentration of 0.01 to 6 wt% based on the weight of the plate.

In an especially preferred form of embodiment, the plate in accordance with the invention contains an amorphous and/or crystallizable polyethylene terephthalate as the main component, and 0.01 to 6 wt% of 2-[2,4,8,10-tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphopin-6-yl]-oxy)-ethyl]ethanamine (Irgafos<sup>®</sup> 12 from the Ciba Geigy company) and/or tris-(2,4-di-tert.-butylphenyl) phosphite (Irgafos<sup>®</sup> 168 from the Ciba Geigy company) and/or monomeric and/or polymeric carbodiimides (<sup>®</sup>Stabaxsol P10 from the Rheinchemie company) as antioxidants, whereby these are also termed hydrolysis and oxidation stabilizers (see the attachment for the chemical structure[s] and molecular weight[s]).

In addition to the antioxidants, the plate in accordance with the invention can optionally contain further additives such as coloring agents and UV stabilizers.

Suitable coloring agents are described in e.g. the aforementioned German Patent Application Nos. 195 19 578.7 and 195 19 577.9.

The UV stabilizer is preferably one that causes little or no change in color in the amorphous plate. Such UV stabilizers include those from the class of organic and metal organic compounds.

Suitable UV stabilizers are e.g. 2-hydroxybenzophenone, 2-hydroxybenzotriazole, nickel organic compounds, the esters of salicylic acid, derivatives of the esters of cinnamic acid, resorcinol monobenzoates, the anilides of oxalic acid, the esters of hydroxybenzoic acid, sterically hindered amines, and triazines, whereby the 2-hydroxybenzotriazoles and triazines are preferred.

Especially suitable UV stabilizers for the purposes of the present invention are 2-(4,6-diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol and 2,2'-methylene-bis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-phenol.

The concentration of UV stabilizer preferably amounts to 0.01 wt% to 5 wt% based on the weight of the PET plate.

Surprisingly, it has been found that mixtures comprising primary and secondary antioxidants and/or mixtures comprising secondary and/or primary antioxidants together with UV stabilizers bring about a synergistic effect.

The plate can also be provided with a scratch-resistant coating on at least one side. Suitable coating materials and processes are described in the aforementioned German patent Application No. 196 255 34.1.

In accordance with the invention, the antioxidants and optionally the further additives, such as UV stabilizers, coloring agents etc., can be added to the polyethylene terephthalate in the desired concentration at the premises of the raw material manufacturer, or they can be added via the extruder at the time of plate manufacture.

The addition of the antioxidants and further additives by means of master-batch technology is especially advantageous.

In this case, the antioxidants and optionally further additives are fully dispersed in a solid vehicle material. As far as the vehicle materials are concerned, consideration can be given to certain resins or to the polyethylene terephthalate itself that is to be stabilized, or even to other polymers that are sufficiently compatible with the polyethylene terephthalate. It is important that the grain size and bulk density of the master batch be similar to the grain size and bulk density of the polyethylene terephthalate so that homogeneous distribution and hence homogeneous stabilization can take place.

In accordance with the invention, the term crystallizable polyethylene terephthalate is to be understood to mean

- crystallizable and amorphous polyethylene terephthalate homopolymers
- crystallizable and amorphous polyethylene terephthalate copolymers
- crystallizable and amorphous polyethylene terephthalate compounded materials



- crystallizable and amorphous polyethylene terephthalate recycled materials  
and

- other variants of polyethylene terephthalate.

Polyethylene terephthalate polymers with a crystallite melting point  $T_m$  - as measured via DSC (Differential Scanning Calorimetry) using a rate of heating of 10°C/minute - from 220°C to 260°C and preferably from 230°C to 250°C, and with a crystallization temperature range  $T_c$  between 75°C and 260°C, and a glass transition temperature  $T_g$  between 65°C and 90°C, and with a density - as measured in accordance with DIN 53479 - from 1.30 to 1.45, and a crystallinity between 5% and 65%, and a cold (after) crystallization temperature of 120 to 158°C and preferably from 130 to 158°C, represent preferred polymers as starting materials for the manufacture of the plate.

The standard viscosity SV (DCE) of the polyethylene terephthalate, as measured in dichloroacetic acid in accordance with DIN 53728, lies between 800 and 6000, and preferably between 950 and 5000, and especially preferably between 1000 and 4000.

The intrinsic viscosity IV (DCE) is calculated as follows from the standard viscosity SV (DCE):

$$IV (DCE) = 6.67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0.118$$

The bulk density, as measured in accordance with DIN 53466, preferably lies between 0.75 kg/dm<sup>3</sup> and 1.0 kg/dm<sup>3</sup>, and especially preferably between 0.80 kg/dm<sup>3</sup> and 0.90 kg/dm<sup>3</sup>.

The polydispersity  $M_w/M_n$  of the polyethylene terephthalate, as measured by means of GPC, preferably lies between 1.5 and 4.0, and especially preferably between 2.0 and 3.5.

Within the framework of the present invention, the term amorphous plate is to be understood to mean plates that are non-crystalline although they preferably possess a [degree of] crystallinity between 5 and 65% in the preferred form of embodiment of the crystallizable thermoplastic that is used. [The term] non-crystalline, i.e. essentially amorphous, means that the degree of crystallinity is generally below 5%, and preferably below 2%, and especially preferably 0%. In such plates, the polymer is essentially present in the non-oriented state.

The amorphous polyethylene terephthalate plate, which contains at least one antioxidant as the hydrolysis and oxidation stabilizer, can either be in the form of a single layer or several layers.

In the multilayer form of embodiment, the plate is assembled from at least one cover layer and at least one core layer. In regard to this form of embodiment, it is important that the polyethylene terephthalate of the core layer should have a higher standard viscosity than the polyethylene terephthalate of the cover layer(s) which abut(s) the core layer.

Such plates are described in e.g. the applicant's simultaneously pending German patent applications with the titles "Mehrschichtige Platte aus einem krystallisierbaren Thermoplasten, Verfahren zur deren Herstellung und Verwendung", "Mehrschichtige, transparent eingefärbte

Platte aus einem kristallisierbaren Thermoplasten", and "Mehrschichtige, eingefärbte Platte aus einem kristallisierbaren Thermoplasten" ["Multilayer plate comprising a crystallizable thermoplastic, a process for its manufacture, and use", "Multilayer, transparently pigmented plate comprising a crystallizable thermoplastic" and "Multilayer, pigmented plate comprising a crystallizable thermoplastic"]. Reference is made explicitly to these patent applications in connection with the present patent application.

The antioxidant is preferably contained in the cover layer(s) in the multilayer form of embodiment. However, the core layer can also be provided with an antioxidant if required.

In contradistinction to the single layer form, the concentration, which usually amounts to 0.01 wt% to 6 wt%, is based here on the weight of the PET in the layer that has been provided with the antioxidant.

In the case of the single layer form of embodiment, the manufacture of the amorphous plates in accordance with the invention and which are stabilized against hydrolysis and oxidation can take place in accordance with e.g. the extrusion process using an extrusion production line; in the case of the multilayer form of embodiment, it can take place in accordance with e.g. the co-extrusion process. Both processes are elucidated comprehensively in the aforementioned German patent applications to which reference has already been made explicitly in connection with the present invention.

If required, the polyethylene terephthalate can be dried for 4 to 6 h at 160°C to 180°C prior to extrusion.

The polyethylene terephthalate is melted in the extruder together with the antioxidant and, optionally, the further additives. The temperature of the PET melt is preferably in the range from 250°C to 320°C, whereby the temperature of the melt can be adjusted, in essence, either via the temperature of the extruder or via the dwell time of the melt in the extruder.

The drawn melt leaves the extruder/co-extruder via a nozzle such as a broad-slit nozzle, and then it is adjusted to the required size and made smooth and cooled in a flattening machine with at least two rollers.

In order to obtain an amorphous plate with good optical quality, it is important that the temperature of the first roller is in the 50-80°C range.

The plate can then be brought to the desired dimensions.

/5

Whereas polyethylene terephthalate plates that have not been provided with an antioxidant exhibit brittle breakage combined with a drastic lowering of the energy level, which is required to bring about damage, even after 20 days of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95%, plates that have been formulated with an antioxidant exhibit significantly higher energy levels, which are required to bring about damage, and

surprisingly, no brittle breakage when measuring the impact strength using the Charpy method, and little or no thermal degradation.

The conclusion can be drawn from weathering tests that the polyethylene terephthalate plates in accordance with the invention, which have been formulated with a synergistic mixture comprising an antioxidant and a UV stabilizer, will exhibit no significant worsening of the yellow value (a measure of yellowing), and no visible loss of gloss, and no visible surface defects, and high energies levels required to bring about damage, combined with satisfactory mechanical properties even after 8 to 10 years of exterior use.

Completely unexpectedly, superb and economical thermal molding characteristics (thermal molding and vacuum molding characteristics) were also found. In contrast to polycarbonate plates, the plate in accordance with the invention does not have to be pre-dried prior to thermal molding. Polycarbonate plates, by contrast, have to be pre-dried, e.g. prior to thermal molding, for 3 to 50 h at approximately 125°C depending on the plate thickness. In addition, the plate in accordance with the invention excels by virtue of very short, deep drawing cycle times and low temperatures for thermal molding. Because of these properties, molded objects can be manufactured economically with high productivity from the plate in accordance with the invention using conventional thermal molding machines.

In addition, measurements have shown that the plate in accordance with the invention is flammable only with difficulty and that the material then drips off in a non-burning manner with very little smoke formation, so that the plate is also superbly well suited to interior applications and for the construction of trade fairs.

Moreover, the plate in accordance with the invention is also capable of being recycled without problems and with no environmental pollution and with no loss of mechanical properties, as a result of which it is suitable for e.g. utilization as a short-life commercial name plate or other commercial article.

Because of the surprising number of excellent properties, the amorphous polyethylene terephthalate plate in accordance with the invention can be used with advantage for numerous completely different applications: e.g. for exterior applications, such as e.g. for greenhouses, roof coverings, exterior cladding, coverings; for applications in the construction sector, such as light commercial sections, balcony cladding and roof hatches; for interior applications such as e.g. for interior room cladding, for the construction of trade fairs and trade fair articles; and as displays, for name plates, in the illumination sector, in the construction of shops and shelving, as commercial articles, as menu holders, as basketball backboards, as room dividers, as aquaria, as information tablets, as brochure and newspaper stands.

In the following section, the invention will be elucidated by means of examples of embodiments without limiting it thereto.

The individual properties were determined in accordance with the following standards or procedures.

#### Methods of measurement

##### Surface gloss

Surface gloss is measured at an angle of measurement of  $20^\circ$  in accordance with DIN 67 530. The reflector [sic] value is measured as the plate surface's optical parameter. The angle of incidence was adjusted to  $20^\circ$  on the basis of the ASTM-D 523-78 and ISO 2813 standards. A beam of light impinges on the flat test surface at the angle of incidence that has been set up, and then it is reflected or scattered therefrom. The beams of light that fall on the photo-electronic receiver are displayed in the form of proportional electrical magnitudes. The measured value is dimensionless and has to be indicated together with the angle of incidence.

##### Optical transmission

The term optical transmission is to be understood to mean the ratio of the total light that is transmitted relative to the incident quantity of light. The optical transmission is measured using the Hazegard plus apparatus in accordance with ASTM D 1003.

##### Turbidity and clarity

Turbidity is the percentage proportion of the transmitted light that deviates by more than  $2.5^\circ$ , on average, from the incident beam of light. The image acuity is determined at an angle of less than  $2.5^\circ$ . The turbidity and clarity are measured using the Hazegard plus apparatus in accordance with ASTM D 1003.

##### Surface defects

The surface defects are determined visually.

##### Impact strength $a_n$ using the Charpy method

This parameter is determined in accordance with ISO 179/1D.

##### The energy $W_s$ that is required to bring about damage

The energy  $W_s$  that is required to bring about damage (also [known as] the work that is required to bring about damage) is measured using the piercing test (also [known as the] falling pin test) in accordance with ISO 6603-2. The energy that is required to bring about damage is the work that is performed up to the agreed point of damage on the test object.

### Density

The density is determined in accordance with DIN 53 479.

### SV (DCE), IV (DCE)

The standard viscosity SV (DCE) is measured in dichloroacetic acid on the basis of DIN 53 728.

The intrinsic viscosity IV is calculated as follows from the standard viscosity (SV):

$$IV (DCE) = 6.67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0.118$$

### Thermal properties

Thermal properties, such as the crystallite melting point  $T_m$ , the crystallization temperature range  $T_c$ , the after crystallization temperature (cold crystallization temperature)  $T_{CN}$ , and the glass transition temperature  $T_g$ , are measured by means of differential scanning calorimetry (DSC) at a rate of heating of 10°C/minute.

### Molecular weight, polydispersity

The molecular weights  $M_w$  and  $M_n$  and the resulting polydispersity  $M_w/M_n$  are measured by means of gel permeation chromatography (GPC).

### Weathering (double-sided), UV stability

The UV stability in accordance with test specification ISO 4892 is examined as follows:

test apparatus: Atlas Ci 65 Weather Ometer

test conditions: ISO 4892, i.e. artificial weathering

irradiation time: 1000 h (per side)

irradiation: 0.35 W/m<sup>2</sup>, 340 nm

temperature: 50°C

relative atmospheric humidity: 50%

xenon lamp: internal and external filters comprising borosilicate [glass]

irradiation cycles: 102 minutes UV light, then 18 minutes UV light with water being sprayed onto the samples, then 102 minutes UV light once again, etc.

### Color change

The color change in the samples after artificial weathering is measured using a spectrophotometer in accordance with DIN 5033.

The following applies:

$\Delta L$ : the difference in luminosity

$+\Delta L$ : the sample is lighter than the standard

$-\Delta L$ : the sample is darker than the standard

$\Delta A$ : the difference in the red/green region

$+\Delta A$ : the sample is redder than the standard

$-\Delta A$ : the sample is greener than the standard

$\Delta B$ : the difference in the blue/yellow region

$+\Delta B$ : the sample is yellower than the standard

$-\Delta B$ : the sample is bluer than the standard

$\Delta E$ : the total change in color

$$\Delta E = (\Delta L^2 + \Delta A^2 + \Delta B^2)^{1/2}$$

The larger the numerical deviation from the standard, the larger is the difference in color.

Numerical values  $\leq 0.3$  are negligible, and mean that no significant change in color is present.

#### Yellow value

The yellow value G is the decoloration deviation in the yellow direction, and is measured in accordance with DIN 6167. Yellow values  $G \leq 5$  are not visible visually.

/7

#### Example 1

A 4 mm thick, multilayer, transparent, amorphous polyethylene terephthalate plate is manufactured with the layer sequence A-B-A using the co-extrusion process, whereby B represents the core layer and A represents a cover layer. The core layer B is 3.5 mm thick, and the two cover layers, which coat the core layer, are each 250  $\mu\text{m}$  thick.

The polyethylene terephthalate that is used for the core layer B has the following properties:

SV (DCE): 1100

IV (DCE): 0.85 dL/g

density: 1.38 g/cm<sup>3</sup>

crystallinity: 44%

crystallite melting point  $T_m$ : 245°C

crystallization temperature range  $T_c$ : 82°C to 245°C

after crystallization temperature (cold crystallization temperature)  $T_{CN}$ : 152°C

polydispersity  $M_w/M_n$ : 2.02

glass transition temperature: 82°C.

The cover layers A contain polyethylene terephthalate as the main component and, in each case, 1.0 wt% of the antioxidant 2-[2,4,8,10-tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphopin-6-yl]-oxy)-ethyl]ethanamine (Irgafos® 12 from the Ciba-Geigy company).

In order to ensure homogeneous distribution, 1.0 wt% of the antioxidant Irgafos 12 is incorporated directly in the polyethylene terephthalate at the premises of the raw material manufacturer.

The polyethylene terephthalate from which the cover layers are manufactured has a standard viscosity SV (DCE) of 1010 which corresponds to an intrinsic viscosity IV (DCE) of 0.79 dL/g. The moisture content is < 0.2% and the density (DIN 53 479) is 1.41 g/cm<sup>3</sup>. The crystallinity amounts to 59%, whereby the crystallite melting point is 259°C in accordance with DSC measurements.

The crystallization temperature range  $T_c$  is between 83°C and 258°C, whereby the after crystallization temperature (also [known as the] cold crystallization temperature)  $T_{CN}$  is 144°C. The polydispersity  $M_w/M_n$  of the polyethylene terephthalate amounts to 2.14.

The glass transition temperature is 83°C.

Prior to co-extrusion, the polyethylene terephthalate for the core layer and the hydrolysis-stabilized polyethylene terephthalate for the cover layers are dried for 5 h at 170°C in the drier, and then they are co-extruded through a broad-slit nozzle on a flattening-type calendering machine, whose rollers are arranged in an S-shaped manner, and then they are flattened to give a three-layer plate with a thickness of 4 mm.

The extrusion temperature of the main extruder for the core layer is 282°C. The extrusion temperatures of the two co-extruders for the cover layers are each 294°C. The first calendering roller has a temperature of 65°C, and the subsequent rollers each have a temperature of 58°C. The withdrawal speed is 4.2 m/minute.

As a sequel to after cooling, the three-layer transparent plate is hemmed at the edges with separating saws, and then it is cut to length and stacked.

The transparent, amorphous, three-layer PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- layer structure: A-B-A
- total thickness: 4 mm
- thickness of the core layer: 3.5 mm
- thickness of the cover layers: 0.25 mm in each case

- surface gloss 1st side: 191
- (angle of measurement 200 [sic 20°]) 2nd side: 189
- optical transmission: 93.0%
- clarity (clearness): 100%
- turbidity: 0.7%
- surface defects per m<sup>2</sup>: none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 139 J

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95%:

- surface gloss 1st side: 173
- (angle of measurement 200 [Sic; 20°]) 2nd side: 169
- optical transmission: 91.8%
- clarity: 100%
- turbidity: 1.0
- surface defects per m<sup>2</sup>: none
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 118 J.

/8

### Example 2

A 4 mm thick, transparent, PET plate is manufactured analogously to Example 1. The core layer contains 0.1 wt% of the antioxidant Irgafos 12 as the hydrolysis stabilizer, whereby the antioxidant had already been added at the premises of the raw material manufacturer.

The cover layers each contain 1.0 wt% of the antioxidant Irgafos 12 and 2 wt% of the UV stabilizer 2-(4,6-diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxyphenol (<sup>®</sup>Tinvin 1577 from the Ciba Geigy company). The two stabilizers were added directly to the polyethylene terephthalate at the premises of the raw material manufacturer.

The transparent PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- total thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 176
- (angle of measurement 200) 2nd side: 172



- optical transmission: 92.7%
- clarity (clearness): 99.8%
- turbidity: 1.8%
- surface defects per  $m^2$ : none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 132 J
- crystallinity: 0%
- density: 1.33  $g/cm^3$

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95%, followed by 1000 h of weathering per side using the Atlas Ci 65 Weather Ometer:

- surface gloss 1st side: 154
- (angle of measurement 200) 2nd side: 152
- optical transmission: 91.2%
- clarity: 99.4%
- turbidity: 2.8%
- total discoloration  $\Delta E$ : 0.24
- dark discoloration  $\Delta L$ : -0.19
- red/green discoloration  $\Delta A$ : -0.08
- blue/yellow discoloration  $\Delta B$ : 0.12
- surface defects: none  
(fissures, brittleness)
- yellow value G: 4
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 121 J.
- crystallinity: 0%
- density: 1.33  $g/cm^3$ .

### Example 3

A 4 mm thick, single layer, transparent plate is manufactured that contains polyethylene terephthalate as the main component, and 0.5 wt% of the antioxidant <sup>®</sup>Irgafos 12 (Ciba Geigy company).

In order to ensure homogeneous distribution, 0.5 wt% of the antioxidant Irgafos 12 were incorporated directly into the polyethylene terephthalate at the premises of the raw material manufacturer.

The polyethylene terephthalate that is used has a standard viscosity SV (DCE) of 1010 which corresponds to an intrinsic viscosity IV (DCE) of 0.79 dL/g. The moisture content is <0.2% and the density (DIN 53479) is 1.41 g/cm<sup>3</sup>. The crystallinity amounts to 59%, whereby the crystallite melting point is 258°C in accordance with DSC measurements.

The crystallization temperature range  $T_c$  is between 83°C and 258°C, whereby the after crystallization temperature (also [known as the] cold crystallization temperature)  $T_{CN}$  is 144°C. The polydispersity  $M_w/M_n$  of the polyethylene terephthalate amounts to 2.14.

The glass transition temperature is 83°C.

Prior to extrusion, the polyethylene terephthalate is dried for 5 h at 170°C in a drier and then, using a single screw extruder, it is extruded through a broad-slit nozzle onto a flattening-type calendering machine, whose rollers are arranged in an S-shaped manner, and then flattened to give a plate with a thickness of 4 mm. The first calendering roller has a temperature of 65°C, and the subsequent rollers each have a temperature of 58°C.

As a sequel to after-cooling, the transparent 4 mm plate is hemmed at the edges with separating saws, and then cut to length and stacked.

/9

The transparent, amorphous, PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 198
- (angle of measurement 200) 2nd side: 196
- optical transmission: 92%
- clarity (image acuity): 100%
- turbidity: 0.5%
- surface defects per m<sup>2</sup>: none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good, no defects
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 136 J
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>

The single layer PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95%:

- surface gloss 1st side: 182
- (angle of measurement 200) 2nd side: 180
- optical transmission: 90.5%

- clarity (image acuity): 99%
- turbidity: 0.9%
- surface defects per  $m^2$ : none
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good, no defects
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 128 J.
- crystallinity: 0%
- density: 1.33  $g/cm^3$ .

#### Example 4

A 4 mm thick, transparent, PET plate is manufactured analogously to Example 3, whereby the antioxidant <sup>®</sup>Irgafos 12 is added in the form of a master batch. The master batch is composed of 5 wt% of <sup>®</sup>Irgafos 12 as the active component, and 95 wt% of the polyethylene terephthalate from Example 3.

Prior to extrusion, 90 wt% of the polyethylene terephthalate from Example 3 are dried for 5 h at 170°C together with 10 wt% of the master batch. Extrusion and plate manufacture take place analogously to Example 3.

The transparent, amorphous, PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 192
- (angle of measurement 200) 2nd side: 191
- optical transmission: 91.3%
- clarity (clearness): 100%
- turbidity: 0.6%
- surface defects per  $m^2$ : none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 133 J
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- density: 1.33  $g/cm^3$

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95%:

- surface gloss 1st side: 179
- (angle of measurement 200) 2nd side: 178

- optical transmission: 90.2%
- clarity (image acuity): 99.2%
- turbidity: 1.0%
- surface defects per m<sup>2</sup>: none
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 128 J
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>.

/10

#### Example 5

A 4 mm thick, transparent, PET plate is manufactured analogously to Example 3. The single layer PET plate contains 0.5 wt% of the antioxidant <sup>®</sup>Irgafos 12 (Ciba Geigy company), and 1.5 wt% of the UV stabilizer 2-(4,6-diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxyphenol (<sup>®</sup>ITinuvin [sic] 1577 from the Ciba Geigy company).

Tinuvin 1577 has a melting point of 149°C and is thermally stable up to approximately 330°C. The stabilizers were added at the premises of the raw material manufacturer.

The transparent, amorphous, PET plate that is obtained has the following properties:

- thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 183
- (angle of measurement 200) 2nd side: 180
- optical transmission: 90.1%
- clarity (image acuity): 99.0%
- turbidity: 1.4%
- surface defects per m<sup>2</sup>: none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 140 J
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95% followed by 1000 h of weathering per side using the Atlas Ci 65 Weather Ometer:

- surface gloss 1st side: 171
- (angle of measurement 200) 2nd side: 169

- optical transmission: 89.1%
- clarity (image acuity): 97%
- turbidity: 2.6%
- total discoloration  $\Delta E$ : 0.22
- dark discoloration  $\Delta L$ : -0.18
- red/green discoloration  $\Delta A$ : -0.08
- blue/yellow discoloration  $\Delta B$ : 0.10
- surface defects: none  
(fissures, brittleness)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 119 J
- crystallinity: 0%.
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>.

#### Example 6

A 4 mm thick, white, amorphous, PET plate is manufactured analogously to Example 5. In addition to the two stabilizers <sup>®</sup>Tinuvin 1577 and <sup>®</sup>Irgafos 12, the plate contains 12.6 wt% of titanium dioxide as a coloring agent.

The titanium dioxide is of the rutile type, and is coated with an inorganic coating comprising Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and an organic coating comprising polydimethylsiloxane. The titanium dioxide has an average particle diameter of 0.2  $\mu$ m.

The titanium dioxide is added in the form of a master batch. The master batch is composed of 30 wt% of the titanium dioxide, which has been described, as the active component and 70 wt% of the polyethylene terephthalate, which has been described, as the vehicle material.

Prior to extrusion, 80 wt% of the polyethylene terephthalate, which had been provided with 1.5 wt% of Tinuvin 1577 and 0.5 wt% of Irgafos 12, and 20 wt% of the titanium dioxide master batch are dried for 5 h at 170°C in a drier.

Extrusion and plate manufacture take place analogously to Example 3.

The white pigmented plate that is obtained exhibits the following properties:

- thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 128
- (angle of measurement 200) 2nd side: 127
- optical transmission: 0%
- degree of whiteness: 116
- pigmentation: white, homogeneous

- surface defects per  $m^2$ : none  
(pinholes, orange peel, bubbles, etc.)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- energy required to bring about damage  $W_s$  at  $23^\circ\text{C}$ : 143 J.

The white PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of  $50^\circ\text{C}$  and a relative atmospheric humidity of 95% followed by 1000 h of weathering per side using the Atlas Ci 65 Weather Ometer:

- surface gloss 1st side: 120
- (angle of measurement 200) 2nd side: 117
- optical transmission: 0%
- degree of whiteness: 108%
- pigmentation: white, homogeneous
- surface defects: none  
(fissures, brittleness)
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- energy required to bring about damage  $W_s$  at  $23^\circ\text{C}$ : 126 J.

#### Comparative Example 1

A 4 mm thick, multilayer, transparent, amorphous, PET plate is manufactured analogously to Example 1 with the layer sequence A-B-A. The plate does not contain any antioxidant.

The transparent, amorphous, three-layer PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- layer structure: A-B-A
- thickness of the cover layers: 0.25 mm in each case
- thickness of the base layers: 3.5 mm
- total thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 195
- (angle of measurement 200) 2nd side: 193
- optical transmission: 93%
- clarity (clearness): 99.6%
- turbidity: 0.6%
- surface defects per  $m^2$ : none

- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 138 J
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>.

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95% followed by 1000 h of weathering per side using the Atlas Ci 65 Weather Ometer:

- surface gloss 1st side: 94
- (angle of measurement 200) 2nd side: 92
- optical transmission: 71.2%
- clarity: 80.4%
- turbidity: 8.4%
- total discoloration  $\Delta E$ : 3.71
- dark discoloration  $\Delta L$ : -0.31
- red/green discoloration  $\Delta A$ : -0.87
- blue/yellow discoloration  $\Delta B$ : +3.59
- surface defects: brittleness
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: brittle breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 4 J
- cold deformability: fissure formation
- crystallinity: 0%.
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>.

### Comparative Example 2

/12

A 4 mm thick, transparent PET plate is manufactured analogously to Example 5. The plate does not contain any antioxidant or UV stabilizer. The transparent, amorphous, single layer PET plate that is obtained has the following profile of properties:

- thickness: 4 mm
- surface gloss 1st side: 195
- (angle of measurement 200) 2nd side: 192
- optical transmission: 92.5%
- clarity (image acuity): 100%
- turbidity: 0.4%
- surface defects per m<sup>2</sup>: none
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: no breakage

- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 138 J
- cold deformability: good
- crystallinity: 0%
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>

The PET plate exhibits the following properties after 1000 h of storage in a drying cabinet at a temperature of 50°C and a relative atmospheric humidity of 95% followed by 1000 h of weathering per side using the Atlas Ci 65 Weather Ometer:

- surface gloss 1st side: 94
- (angle of measurement 200) 2nd side: 92
- optical transmission: 71.2%
- clarity: 80.4%
- turbidity: 8.4%
- total discoloration  $\Delta E$ : 3.71
- dark discoloration  $\Delta L$ : -0.31
- red/green discoloration  $\Delta A$ : -0.87
- blue/yellow discoloration  $\Delta B$ : +3.59
- surface defects: brittleness
- impact strength  $a_n$  using the Charpy method: brittle breakage
- energy required to bring about damage  $W_s$  at 23°C: 4 J
- cold deformability: fissure formation
- crystallinity: 0%.
- density: 1.33 g/cm<sup>3</sup>.

#### Claims

1. Amorphous plate with a thickness in the range from 0.8 to 20 mm that contains a crystallizable polyethylene terephthalate as the main component, and at least one antioxidant.
2. Plate in accordance with Claim 1, whereby the antioxidant is present at a concentration of 0.1 to 6 wt% based on the weight of the polyethylene terephthalate in the plate.
3. Plate in accordance with Claim 1 or 2, whereby the antioxidant is selected from the sterically hindered phenols, secondary aromatic amines, phosphites, phosphonites, thio-ethers, carbodiimides, and zinc dibutyldithiocarbamate, whereby at least one such antioxidant is present.
4. Plate in accordance with Claim 3, whereby the antioxidant is 2-[2,4,8,10-tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphopin-6-yl]-oxy)-ethyl]ethanamine and/or tris-(2,4-di-tert.-butylphenyl) phosphite.
5. Plate in accordance with one of the preceding claims, whereby the plate contains at least one UV stabilizer.



6. Plate in accordance with Claim 5, whereby the concentration of the UV stabilizer is in the range from 0.01 to 5 wt% based on the weight of the crystallizable thermoplastic.

7. Plate in accordance with Claim 5 or 6, whereby the UV stabilizer is selected from the 2-hydroxybenzotriazoles and triazines.

8. Plate in accordance with Claim 7, whereby the UV stabilizer is selected from 2-(4,6-diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol and 2,2'-methylenebis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-phenol.

9. Plate in accordance with one of the preceding claims, whereby the plate contains at least one coloring agent.

10. Plate in accordance with Claim 9, whereby the coloring agent is selected from the dyes and pigments.

11. Plate in accordance with one of the preceding claims, whereby the plate has a scratch-resistant coating on at least one side.

12. Plate in accordance with Claim 11, whereby the scratch-resistant coating contains silicon and/or an acrylic material.

13. Plate in accordance with one of the preceding claims, whereby the plate has a multilayer structure with at least one cover layer and at least one core layer.

14. Plate in accordance with Claim 13, whereby the standard viscosity of the polyethylene terephthalate in the core layer is greater than that of the polyethylene terephthalate in the adjacent cover layer.

15. Plate in accordance with Claim 13 or 14, whereby the plate has a multilayer structure with two cover layers, and a core layer that is located between the cover layers.

/13

16. Plate in accordance with one of the Claims 13 through 15, whereby the antioxidant is contained in the cover layer, and whereby at least one such antioxidant is present.

17. Plate in accordance with one of the Claims 13 through 16, whereby the UV stabilizer is contained in the cover layer, and whereby at least one such stabilizer is present.

18. Process for the manufacture of a single layer, amorphous, plate in accordance with one of the Claims 1 through 12, whereby the polyethylene terephthalate is melted in an extruder together with the antioxidant, whereby at least one such antioxidant is present, and the melt is drawn through a nozzle and the plate that is obtained is then brought to the exact size in a flattening machine with at least two rollers, and then it is flattened and cooled, whereby the first roller of the flattening machine has a temperature in the range from 50 to 80°C.

19. Process for the manufacture of a multilayer, amorphous plate in accordance with one of the Claims 13 through 17, whereby the polyethylene terephthalate for the core layer and the polyethylene terephthalate for the cover layer are melted in a co-extruder together with the antioxidant, whereby at least one such core layer is present and at least one such antioxidant is

present and at least one such cover layer is present, and the melts are formed into layers one above the other, and the layers that have been brought together are drawn through a nozzle and then brought to the exact size in a flattening machine with at least two rollers, and then flattened and cooled, whereby the temperature of the first roller of the flattening machine is in the range from 50 to 80°C.

20. Process in accordance with one of the Claims 18 or 19, whereby the polyethylene terephthalate is pre-dried for 4 to 6 h at a temperature in the range from 160 to 180°C prior to extrusion.

21. Process in accordance with one of the Claims 18 through 20, whereby the temperature of the polyethylene terephthalate melt is in the range from 250 to 320°C.

22. Process in accordance with one of the Claims 18 through 21, whereby the additives, which are selected from the antioxidants, UV stabilizers and coloring agents, are added using master batch technology.

23. Use of an amorphous plate in accordance with one of the Claims 1 through 16 in the exterior and interior sector.



⑮ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 196 30 599 A 1**

⑳ Aktenzeichen: 196 30 599.3  
㉑ Anmeldetag: 31. 7. 96  
㉒ Offenlegungstag: 5. 2. 98

⑤① Int. Cl.<sup>6</sup>:  
**C 08 L 67/02**  
C 08 J 5/18  
C 08 J 3/20  
C 08 J 3/22  
C 08 J 11/00  
C 08 K 5/13  
C 08 K 5/18  
C 08 K 5/5313  
C 08 K 5/5317  
C 08 K 5/372  
C 08 K 5/29  
C 08 K 5/56

DE 196 30 599 A 1

⑦① Anmelder:  
Hoechst AG, 65929 Frankfurt, DE

⑦② Erfinder:  
Murschall, Ursula, Dr., 55283 Nierstein, DE; Brunow,  
Rainer, 65817 Eppstein, DE

PTO 2003-2345  
S.T.I.C. Translations Branch

⑤④ Polyethylenterephthalat-Platte mit verbesserter Hydrolysestabilität, Verfahren zur Herstellung und Verwendung

⑤⑦ Die Erfindung betrifft eine amorphe Polyethylenterephthalat-Platte mit einer Dicke im Bereich von 0,8 bis 20 mm, die mindestens ein Antioxydans als Hydrolyse- und Oxidationsstabilisator enthält.

DE 196 30 599 A 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine amorphe Polyethylenterephthalat-Platte, deren Dicke im Bereich von 0,8 bis 20 mm liegt. Die Platte enthält mindestens ein Antioxydant als Hydrolyse- und Oxidationsstabilisator und zeichnet sich neben guten mechanischen Eigenschaften durch eine verbesserte Hydrolysestabilität aus. Die Erfindung betrifft ferner ein Verfahren zur Herstellung dieser Platte und ihre Verwendung.

Amorphe Platten mit einer Dicke von 1 bis 20 mm, die als Hauptbestandteil einen kristallisierbaren Thermoplasten, z. B. Polyethylenterephthalat (PET), enthalten können, wurden von der Anmelderin bereits in mehreren Deutschen Patentanmeldungen beschrieben (Deutsche Patentanmeldungen Nr. 195 19 579.5, 195 19 578.7, 195 19 577.9, 195 22 118.4, 195 22 120.6, 195 22 119.2, 195 28 336.8, 195 28 334.1, 195 28 333.3).

Diese Platten können je nach Verwendungszweck transparent oder gedeckt mit Farbmitteln wie Farbstoffen und Pigmenten eingefärbt sein. Sie können zudem einen oder mehrere UV-Stabilisatoren enthalten. Der zur Herstellung dieser Platten eingesetzte kristallisierbare Thermoplast, z. B. Polyethylenterephthalat, weist vorzugsweise eine Standardviskosität in einem Bereich von 800 bis 6000 auf. Zudem können diese Platten mindestens einseitig eine kratzfeste Beschichtung haben. Diese Beschichtung ist vorzugsweise silicium- und/oder acrylhaltig (Deutsche Patentanmeldung Nr. 196 25 534.1).

Die Platten zeichnen sich insgesamt durch ausgezeichnete optische sowie mechanische Eigenschaften aus. In diesen Anmeldungen sind auch Verfahren zur Herstellung dieser Platten beschrieben.

Es versteht sich von selbst, daß die in diesen Anmeldungen beschriebenen amorphen Platten mit PET als kristallisierbaren Thermoplasten für die nachfolgend erläuterte Erfindung eingesetzt werden können, so daß auf diese Anmeldungen für die vorliegende Erfindung ausdrücklich bezug genommen wird und daß sie durch Zitat als Bestandteil der vorliegenden Anmeldung gelten.

In der EP-A-0 471 528 wird ein Verfahren zum Formen eines Gegenstandes aus einer Polyethylenterephthalat (PET)-Platte beschrieben. Die PET-Platte wird in einer Tiefziehform beidseitig in einem Temperaturbereich zwischen der Glasübergangstemperatur und der Schmelztemperatur wärmebehandelt. Die geformte PET-Platte wird aus der Form herausgenommen, wenn das Ausmaß der Kristallisation der geformten PET-Platte im Bereich von 25 bis 50% liegt. Die in der EP-A-0 471 528 offenbarten PET-Platten haben eine Dicke von 1 bis 10 mm.

In der US-A-3,496,143 wird das Vakuum-Tiefziehen einer 3 mm dicken PET-Platte, deren Kristallisation im Bereich von 5 bis 25% liegen sollte, beschrieben. Die Kristallinität des tiefgezogenen Formkörpers ist größer als 25%.

In der Österreichischen Patentschrift Nr. 304 086 ist ein Verfahren zur Herstellung von transparenten Formkörpern nach dem Tiefziehverfahren beschrieben, wobei als Ausgangsmaterial eine PET-Platte oder -folie mit einem Kristallinitätsgrad unter 5% eingesetzt wird.

Die als Ausgangsmaterial verwendete Platte oder Folie ist aus einem PET mit einer Kristallisationstemperatur von mindestens 160°C hergestellt worden. Aus dieser relativ hohen Kristallisationstemperatur folgt, daß es sich hierbei nicht um ein PET-Homopolymeres handelt, sondern um glykolmodifiziertes PET, kurz PET-G genannt, das ein PET-Copolymer ist.

Im Gegensatz zu reinem PET zeigt PET-G aufgrund der zusätzlich eingebauten Glykoleinheiten eine äußerst geringe Neigung zur Kristallisation und liegt üblicherweise im amorphen Zustand vor.

All diese Platten sind in keiner Weise gegen Hydrolyse stabilisiert.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, eine amorphe Platte mit einer Dicke von 0,8 bis 20 mm bereitzustellen, die neben guten mechanischen und homogenen optischen Eigenschaften vor allem eine verbesserte Hydrolyse- und Oxidationsstabilität aufweist.

Verbesserte Hydrolyse- und Oxidationsstabilität bedeutet, daß die Platten selbst durch Lagerung bei Temperaturen bis 50°C in Kombination mit einer relativen Luftfeuchtigkeit bis zu 95% keine wesentliche Beeinträchtigung der mechanischen Eigenschaften, insbesondere keine drastische Erniedrigung der Schädigungsenergien erfahren, so daß die Platten vorteilhaft für Außenanwendungen und kritische Innenanwendungen eingesetzt werden können.

Zu den guten mechanischen Eigenschaften zählen unter anderem eine hohe Schlagzähigkeit sowie eine hohe Bruchfestigkeit.

Zu den homogenen optischen Eigenschaften zählen beispielsweise ein hoher Oberflächenglanz sowie Fehlen von Oberflächendefekten wie Pickel, Stippen und Orangenhaut. Im Falle von transparenten Platten zählen zu der homogenen Optik auch eine hohe Lichttransmission, eine niedrige Trübung und eine hohe Bildschärfe (Clarity), während im Falle von gedeckt eingefärbten Platten eine homogene, streifenfreie Einfärbung dazugehört.

Darüber hinaus sollte die erfindungsgemäße Platte recycelbar sein, insbesondere ohne Verlust der mechanischen Eigenschaften, sowie schwer brennbar, damit sie beispielsweise auch für Innenanwendungen und im Messebau eingesetzt werden kann.

Gelöst wird die Aufgabe durch eine amorphe Platte mit einer Dicke im Bereich von 0,8 bis 20 mm, die als Hauptbestandteil ein kristallisierbares Polyethylenterephthalat enthält, die dadurch gekennzeichnet ist, daß die Platte mindestens ein Antioxydant als Hydrolyse- und Oxidationsstabilisator enthält.

Die typischen Erscheinungsbilder der Hydrolyse und Oxidation werden zusammenfassend als Alterungserscheinungen bezeichnet und hängen im wesentlichen von der Art des Polymeren und seiner Verwendung ab. Sie sind einerseits ästhetischer Natur, wie z. B. Vergilbung, Glanzverlust, Transparenzverlust, Oberflächenrisse, andererseits erfolgt aber parallel dazu ein Verlust an mechanischen Eigenschaften, wie Sprödebruch, drastische Erniedrigung der Schädigungsenergie und drastischer Abfall der Schlagzähigkeit, wodurch schließlich das Eigenschaftsbild der Platte in einer Weise beeinträchtigt wird, daß sie ihre Gebrauchstüchtigkeit verliert.

Grundsätzlich bieten sich verschiedene Möglichkeiten, die Oxidations- und Hydrolyseerscheinungen in verzö-

gerndem Sinne zu beeinflussen:

- Strukturelle Modifizierung des Thermoplasten
- Blockierung von Endgruppen
- Zusatz von Antioxidantien.

5

Antioxidantien sind chemische Verbindungen, die die Oxidations- und Hydrolyseerscheinungen und die daraus resultierende Alterung verzögern können.

Für die erfindungsgemäße Polyethylenterephthalat-Platte geeignete Antioxidantien lassen sich wie folgt aufteilen:

10

Additivgruppe	Stoffklasse
primäre Antioxidantien	sterisch gehinderte Phenole und/oder sekundäre, aromatische Amine
sekundäre Antioxidantien	Phosphite und Phosphonite Thioether, Carbodiimide Zink-dibutyl-dithiocarbamat

15

20

25

In einer bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße, amorphe Polyethylenterephthalat-Platte ein Phosphit und/oder ein Phosphonit und/oder ein Carbodiimid als Antioxydant.

Beispiele für erfindungsgemäß verwendete Antioxydantien sind 2-[(2,4,8,10-Tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphepin-6-yl]oxy)-ethyljethanamin und Tris-(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit.

30

Das Antioxydant liegt üblicherweise in einer Konzentration von 0,01 bis 6 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Platte, vor.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße Platte als Hauptbestandteil ein amorphes und/oder ein kristallisierbares Polyethylenterephthalat und 0,01 bis 6 Gew.-% 2-[(2,4,8,10-Tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphepin-6-yl]oxy)-ethyljethanamin (\*Irgafos 12 der Fa. Ciba Geigy) und/oder Tris-(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit (\*Irgafos 168 der Fa. Ciba Geigy) und/oder monomere und/oder polymere Carbodiimide (\*Stabaxsol P10 der Fa. Rheinchemie) als Antioxydantien, auch als Hydrolyse- und Oxidationsstabilisator bezeichnet, (Chemische Struktur, Molekulargewicht vgl. Anlage).

35

Neben den Antioxydantien kann die erfindungsgemäße Platte wahlweise weitere Additive wie Farbmittel und UV-Stabilisatoren enthalten.

40

Geeignete Farbmittel sind z. B. in den vorstehend genannten Deutschen Patentanmeldungen Nr. 195 19 578.7 und 195 19 577.9 beschrieben.

Der UV-Stabilisator ist vorzugsweise einer, der in der amorphen Platte keine oder nur eine geringfügige Farbänderung verursacht. Zu derartigen UV-Stabilisatoren zählen diejenigen aus der Klasse der organischen und metallorganischen Verbindungen.

45

Geeignete UV-Stabilisatoren sind z. B. 2-Hydroxybenzophenone, 2-Hydroxybenzotriazole, nickelorganische Verbindungen, Salicylsäureester, Zimtsäureester-Derivate, Resorcinmonobenzoate, Oxalsäureanilide, Hydroxybenzoesäureester, sterisch gehinderte Amine und Triazine, wobei die 2-Hydroxybenzotriazole und die Triazine bevorzugt sind.

50

Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung besonders geeignete UV-Stabilisatoren sind 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol und 2,2'-Methylen-bis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-phenol).

Die Konzentration an UV-Stabilisator beträgt vorzugsweise 0,01 Gew.-% bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des PET der Platte.

55

Überraschenderweise hat sich gezeigt, daß Mischungen aus primären und sekundären Antioxidantien und/oder Mischungen aus sekundären und/oder primären Antioxidantien mit UV-Stabilisatoren einen synergistischen Effekt bewirken.

Die Platte kann auch mindestens einseitig mit einer kratzfesten Beschichtung versehen sein. Geeignete Beschichtungsmaterialien und -verfahren sind in der vorstehend genannten Deutschen Patentanmeldung Nr. 196 255 34.1 beschrieben.

60

Erfindungsgemäß können die Antioxidantien sowie gegebenenfalls die weiteren Additive wie UV-Stabilisatoren, Farbmittel etc. in der gewünschten Konzentration bereits beim Rohstoffhersteller zu dem Polyethylenterephthalat dosiert werden oder bei der Plattenherstellung in den Extruder dosiert werden.

Besonders vorteilhaft ist die Zugabe der Antioxidantien und der weiteren Additive mittels Masterbatchtechnologie.

65

Dabei werden die Antioxidantien, und gegebenenfalls die weiteren Additive in einem festen Trägermaterial voll dispergiert. Als Träger kommen gewisse Harze, das zu stabilisierende Polyethylenterephthalat selbst oder

auch andere Polymere, die mit dem Polyethylenterephthalat ausreichend verträglich sind, in Frage. Wichtig ist, daß die Korngröße und das Schüttgewicht des Masterbatches ähnlich der Korngröße und dem Schüttgewicht des Polyethylenterephthalats sind, so daß eine homogene Verteilung und damit eine homogene Stabilisierung erfolgen kann.

Erfindungsgemäß versteht man unter kristallisierbarem Polyethylenterephthalat

- kristallisierbare und amorphe Polyethylenterephthalat-Homopolymere
- kristallisierbare und amorphe Polyethylenterephthalat-Copolymere
- kristallisierbare und amorphe Polyethylenterephthalat-Compounds
- kristallisierbare und amorphe Polyethylenterephthalat-Recyklat

und

- andere Varianten von Polyethylenterephthalat.

Polyethylenterephthalat-Polymere mit einem Kristallitschmelzpunkt  $T_m$ , gemessen mit DSC (Differential Scanning Calorimetry) mit einer Aufheizgeschwindigkeit von  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , von  $220^\circ\text{C}$  bis  $260^\circ\text{C}$ , vorzugsweise von  $230^\circ\text{C}$  bis  $250^\circ\text{C}$ , mit einem Kristallisationstemperaturbereich  $T_c$  zwischen  $75^\circ\text{C}$  und  $260^\circ\text{C}$ , einer Glasübergangstemperatur  $T_g$  zwischen  $65^\circ\text{C}$  und  $90^\circ\text{C}$  und mit einer Dichte, gemessen nach DIN 53479, von 1,30 bis 1,45, einer Kristallinität zwischen 5% und 65%, und einer Kalt-(Nach-)kristallisationstemperatur von 120 bis  $158^\circ\text{C}$ , vorzugsweise von 130 bis  $158^\circ\text{C}$  stellen als Ausgangsmaterialien zur Herstellung der Platte bevorzugte Polymere dar.

Die Standardviskosität SV (DCE) des Polyethylenterephthalats, gemessen in Dichloressigsäure nach DIN 53728, liegt zwischen 800 und 6000, vorzugsweise zwischen 950 und 5000 und besonders bevorzugt zwischen 1000 und 4000.

Die intrinsische Viskosität IV (DCE) berechnet sich wie folgt aus der Standardviskosität SV (DCE):

$$IV(\text{DCE}) = 6,67 \cdot 10^{-4} SV(\text{DCE}) + 0,118$$

Das Schüttgewicht, gemessen nach DIN 53466 liegt vorzugsweise zwischen  $0,75 \text{ kg}/\text{dm}^3$  und  $1,0 \text{ kg}/\text{dm}^3$ , und besonders bevorzugt zwischen  $0,80 \text{ kg}/\text{dm}^3$  und  $0,90 \text{ kg}/\text{dm}^3$ .

Die Polydispersität des Polyethylenterephthalats  $M_w/M_n$  gemessen mittels GPC liegt vorzugsweise zwischen 1,5 und 4,0 und besonders bevorzugt zwischen 2,0 und 3,5.

Unter amorpher Platte werden im Sinne der vorliegenden Erfindung solche Platten verstanden, die, obwohl in der bevorzugten Ausführungsform der eingesetzte kristallisierbare Thermoplast vorzugsweise eine Kristallinität zwischen 5 und 65% besitzt, nicht kristallin sind. Nicht kristallin, d. h. im wesentlichen amorph bedeutet, daß der Kristallinitätsgrad im allgemeinen unter 5%, vorzugsweise unter 2% liegt und besonders bevorzugt 0% beträgt. In derartigen Platten liegt das Polymer im wesentlichen in einem unorientierten Zustand vor.

Die amorphe Polyethylenterephthalat-Platte, die mindestens ein Antioxydant als Hydrolyse- und Oxidationsstabilisator enthält, kann sowohl einschichtig als auch mehrschichtig sein.

In der mehrschichtigen Ausführungsform ist die Platte aus mindestens einer Deckschicht und mindestens einer Kernschicht aufgebaut. Für diese Ausführungsform ist es wesentlich, daß das Polyethylenterephthalat der Kernschicht eine höhere Standardviskosität besitzt als das Polyethylenterephthalat der Deckschicht(en), die an die Kernschicht angrenzt (angrenzen).

Derartige Platten sind z. B. in den gleichzeitig anhängigen Deutschen Anmeldungen der Anmelderin mit Titel "Mehrschichtige Platte aus einem kristallisierbaren Thermoplasten, Verfahren zur deren Herstellung und Verwendung", "Mehrschichtige, transparent eingefärbte Platte aus einem kristallisierbaren Thermoplasten" und "Mehrschichtige, eingefärbte Platte aus einem kristallisierbaren Thermoplasten" beschrieben. Auf diese Anmeldungen wird für die vorliegende Anmeldung ausdrücklich verwiesen.

In der mehrschichtigen Ausführungsform ist das Antioxydant vorzugsweise in der bzw. den Deckschicht(en) enthalten. Jedoch kann nach Bedarf auch die Kernschicht mit Antioxydant ausgerüstet sein.

Anders als in der einschichtigen Form bezieht sich hier die Konzentration von üblicherweise 0,01 Gew.-% bis 6 Gew.-% auf das Gewicht des PET in der mit dem Antioxydant ausgerüsteten Schicht.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen, amorphen gegen Hydrolyse und Oxidation stabilisierten Platten kann im Falle der einschichtigen Ausführungsform beispielsweise nach einem Extrusionsverfahren in einer Extrusionsstraße und im Falle der mehrschichtigen Ausführungsform beispielsweise nach einem Coextrusionsverfahren erfolgen. Beide Verfahren sind in den vorstehend genannten deutschen Patentanmeldungen ausführlich erläutert, auf die für die vorliegende Erfindung bereits ausdrücklich verwiesen worden ist.

Gegebenenfalls kann das Polyethylenterephthalat vor der Extrusion für 4 bis 6 Stunden bei  $160^\circ\text{C}$  bis  $180^\circ\text{C}$  getrocknet werden.

Das Polyethylenterephthalat wird im Extruder zusammen mit dem Antioxydant und gegebenenfalls mit den weiteren Additiven aufgeschmolzen werden. Vorzugsweise liegt die Temperatur der PET-Schmelze im Bereich von  $250^\circ\text{C}$  bis  $320^\circ\text{C}$ , wobei die Temperatur der Schmelze im wesentlichen sowohl durch die Temperatur des Extruders, als auch die Verweilzeit der Schmelze im Extruder eingestellt werden kann.

Die ausgeformte Schmelze verläßt den Extruder/Coextruder über eine Düse wie einer Breitschlitzdüse und wird dann in einem Glättwerk mit mindestens zwei Walzen kalibriert, geglättet und gekühlt.

Um eine amorphe Platte mit guter optischer Qualität zu erhalten, ist es wesentlich daß die Temperatur der ersten Walze in einem Bereich von  $50-80^\circ\text{C}$  liegt.

Anschließend kann die Platte auf das gewünschte Maß gebracht werden.

Während Polyethylenterephthalat-Platten, die nicht mit einem Antioxydant ausgerüstet sind, bereits nach 20 Tagen Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchte von 95% eine drastische Erniedrigung der Schädigungsenergie in Kombination mit Sprödbbruch aufweisen, zeigen die mit Antioxydant rezeptuierten Platten wesentlich höhere Schädigungsenergien und überraschenderweise keinen Sprödbbruch bei Messung der Schlagzähigkeit nach Charpy und keinen bzw. nur geringfügigen thermischen Abbau.

Aus Bewitterungstests kann gefolgert werden, daß die erfindungsgemäßen Polyethylenterephthalat-Platten, die mit einer synergistischen Mischung aus Antioxydant und UV-Stabilisator rezeptuiert sind, selbst nach 8 bis 10 Jahren Außenanwendung keine signifikante Verschlechterung des Gelbwertes (ein Maß für die Vergilbung), keinen sichtbaren Glanzverlust, keine sichtbaren Oberflächendefekte sowie hohe Schädigungsenergien in Kombination mit zufriedenstellenden mechanischen Eigenschaften aufweisen werden.

Völlig unerwartet wurde zudem ein hervorragendes und wirtschaftliches Thermoform-Verhalten (Warmform- und Vakuumform-Verhalten) festgestellt. Im Gegensatz zu Polycarbonatplatten muß die erfindungsgemäße Platte nicht vor dem Thermoformen vorgetrocknet werden. Polycarbonatplatten müssen dagegen beispielsweise vor dem Thermoformen je nach Plattendicke 3 bis 50 Stunden bei ca. 125°C vorgetrocknet werden. Desweiteren zeichnet sich die erfindungsgemäße Platte durch sehr geringe Tiefziehzykluszeiten und niedrige Temperaturen beim Thermoformen aus. Aufgrund dieser Eigenschaften lassen sich aus der erfindungsgemäßen Platte auf üblichen Thermoformmaschinen wirtschaftlich und mit hoher Produktivität Formkörper herstellen.

Darüber hinaus ergaben Messungen, daß die erfindungsgemäße Platte schwerentflammbar ist und bei sehr geringer Rauchentwicklung nicht-brennend abtropft, so daß sie sich auch ausgezeichnet für Innenanwendungen und für den Messebau eignet.

Desweiteren ist die erfindungsgemäße Platte ohne Umweltbelastung und ohne Verlust der mechanischen Eigenschaften problemlos recycelbar, wodurch sie sich beispielsweise für die Verwendung als kurzlebige Werbeschilder oder anderer Werbeartikel eignet.

Aufgrund der überraschenden Vielzahl ausgezeichneter Eigenschaften kann die erfindungsgemäße amorphe Polyethylenterephthalat-Platte vorteilhaft für zahlreiche, vollkommen unterschiedliche Anwendungen eingesetzt werden: beispielsweise für Außenanwendungen, wie z. B. für Gewächshäuser, Überdachungen, Außenverkleidungen, Abdeckungen, für Anwendungen im Bausektor, Lichtwerbepprofile, Balkonverkleidungen und Dachausstiege, aber auch für Innenanwendungen, wie beispielsweise für Innenraumverkleidung, für Messebau und Messeartikel, als Displays, für Schilder, im Beleuchtungssektor, im Laden- und Regalbau, als Werbeartikel, als Menükartenständer, als Basketball-Zielbretter, als Raumteiler, als Aquarien, als Infotafeln, als Prospekt- und Zeitungsständer.

Die Erfindung wird im folgenden anhand von Ausführungsbeispielen näher erläutert, ohne dadurch beschränkt zu werden.

Die einzelnen Eigenschaften wurden gemäß den folgenden Normen bzw. Verfahren bestimmt:

#### Meßmethoden

#### Oberflächenglanz

Der Oberflächenglanz wird bei einem Meßwinkel von 20° nach DIN 67 530 gemessen. Gemessen wird der Reflektorwert als optische Kenngröße für die Oberfläche einer Platte. Angelehnt an die Normen ASTM-D 523-78 und ISO 2813 wurde der Einstrahlwinkel mit 20° eingestellt. Ein Lichtstrahl trifft unter dem eingestellten Einstrahlwinkel auf die ebene Prüffläche und wird von dieser reflektiert bzw. gestreut. Die auf den photoelektronischen Empfänger auffallenden Lichtstrahlen werden als proportionale elektrische Größe angezeigt. Der Meßwert ist dimensionslos und muß mit dem Einstrahlwinkel zusammen angegeben werden.

#### Lichttransmission

Unter der Lichttransmission ist das Verhältnis des insgesamt durchgelassenen Lichtes zur einfallenden Lichtmenge zu verstehen. Die Lichttransmission wird mit dem Meßgerät Hazegard plus nach ASTM D 1003 gemessen.

#### Trübung und Clarity

Trübung ist der prozentuale Anteil des durchgelassenen Lichtes, der vom eingestrahnten Lichtbündel im Mittel um mehr als 2,5° abweicht. Die Bildschärfe wird unter einem Winkel kleiner als 2,5° ermittelt. Die Trübung und die Clarity werden mit dem Meßgerät Hazegard plus nach ASTM D 1003 gemessen.

#### Oberflächendefekte

Die Oberflächendefekte werden visuell bestimmt.

#### Schlagzähigkeit $a_2$ nach Charpy

Diese Größe wird nach ISO 179/1D ermittelt.

Schädigungsenergie  $W_s$ 

Die Schädigungsenergie  $W_s$  (auch Schädigungsarbeit genannt) wird im Durchstoßversuch (auch Fallbolzenversuch) nach ISO 6603-2 gemessen. Die Schädigungsenergie ist die bis zum vereinbarten Schädigungspunkt am Probekörper geleistete Arbeit.

## Dichte

Die Dichte wird nach DIN 53 479 bestimmt.

## SV (DCE), IV (DCE)

Die Standardviskosität SV (DCE) wird angelehnt an DIN 53 728 in Dichloressigsäure gemessen. Die intrinsische Viskosität (IV) berechnet sich wie folgt aus der Standardviskosität (SV)

$$IV (DCE) = 6,67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0,118$$

## Thermische Eigenschaften

Die thermischen Eigenschaften wie Kristallitschmelzpunkt  $T_m$ , Kristallisationstemperaturbereich  $T_c$ , Nach- (Kalt-) Kristallisationstemperatur  $T_{CN}$  und Glasübergangstemperatur  $T_g$  werden mittels Differential Scanning Calorimetrie (DSC) bei einer Aufheizgeschwindigkeit von  $10^\circ \text{C/min}$  gemessen.

## Molekulargewicht, Polydispersität

Die Molekulargewichte  $M_w$  und  $M_n$  und die resultierende Polydispersität  $M_w/M_n$  werden mittels Gelpermeationschromatographie (GPC) gemessen.

## Bewitterung (beidseitig), UV-Stabilität

Die UV-Stabilität wird nach der Testspezifikation ISO 4892 wie folgt geprüft

Testgerät: Atlas Ci 65 Weather Ometer

Testbedingungen: ISO 4892, d. h. künstliche Bewitterung

Bestrahlungszeit: 1000 Stunden (pro Seite)

Bestrahlung:  $0,35 \text{ W/m}^2$ , 340 nm

Temperatur:  $50^\circ \text{C}$

Relative Luftfeuchte: 50%

Xenonlampe: innerer und äußerer Filter aus Borosilikat

Bestrahlungszyklen: 102 Minuten UV-Licht, dann 18 Minuten UV-Licht mit Wasserbesprühung der Proben, dann wieder 102 Minuten UV-Licht usw.

## Farbveränderung

Die Farbveränderung der Proben nach der künstlichen Bewitterung wird mit einem Spektralphotometer nach DIN 5033 gemessen.

Es gilt:

$\Delta L$ : Differenz in der Helligkeit

+  $\Delta L$ : Die Probe ist heller als der Standard

–  $\Delta L$ : Die Probe ist dunkler als der Standard

$\Delta A$ : Differenz im Rot-Grün-Bereich

+  $\Delta A$ : Die Probe ist roter als der Standard

–  $\Delta A$ : Die Probe ist grüner als der Standard

$\Delta B$ : Differenz im Blau-Gelb-Bereich

+  $\Delta B$ : Die Probe ist gelber als der Standard

–  $\Delta B$ : Die Probe ist blauer als der Standard

$\Delta E$ : Gesamtfarbänderung

$$\Delta E = (\Delta L^2 + \Delta A^2 + \Delta B^2)^{1/2}$$

Je größer die numerische Abweichung vom Standard ist, desto größer ist der Farbunterschied.

Numerische Werte von  $\leq 0,3$  sind vernachlässigbar und bedeuten, daß keine signifikante Farbänderung vorliegt.

## Gelbwert

Der Gelbwert  $G$  ist die Abweichung von der Farblosigkeit in Richtung Gelb und wird gemäß DIN 6167



gemessen. Gelbwert G-Werte von  $\leq 5$  sind visuell nicht sichtbar.

### Beispiel 1

Nach dem Coextrusionsverfahren wird eine 4 mm dicke, mehrschichtige, transparente, amorphe Polyethylenterephthalatplatte mit der Schichtreihenfolge A—B—A, hergestellt, wobei B die Kernschicht und A die Deckschicht repräsentieren. Die Kernschicht B ist 3,5 mm dick und die beiden Deckschichten, welche die Kernschicht überziehen, sind jeweils 250  $\mu\text{m}$  dick.

Das für die Kernschicht B eingesetzte Polyethylenterephthalat hat folgende Eigenschaften:

SV (DCE): 1100

IV (DCE): 0,85 dl/g

Dichte: 1,38 g/cm<sup>3</sup>

Kristallinität: 44%

Kristallschmelzpunkt  $T_m$ : 245°C

Kristallisationstemperaturbereich  $T_c$ : 82°C bis 245°C

Nach-(Kalt-) Kristallisationstemperatur  $T_{CN}$ : 152°C

Polydispersität  $M_w/M_n$ : 2,02

Glasübergangstemperatur: 82°C.

Die Deckschichten A enthalten als Hauptbestandteil Polyethylenterephthalat und jeweils 1,0 Gew.-% des Antioxydans 2-[(2,4,8,10-Tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphin-6-yl)-oxy]-ethyl]ethanamin (\*Irgafos 12 der Firma Ciba-Geigy).

Zur Gewährleistung einer homogenen Verteilung werden 1,0 Gew.-% des Antioxydans Irgafos 12 direkt beim Rohstoffhersteller in das Polyethylenterephthalat eingearbeitet.

Das Polyethylenterephthalat, aus dem die Deckschichten hergestellt werden, hat eine Standardviskosität SV (DCE) von 1010, was einer intrinsischen Viskosität IV (DCE) von 0,79 dl/g entspricht. Der Feuchtigkeitsgehalt liegt bei  $< 0,2\%$  und die Dichte (DIN 53 479) bei 1,41 g/cm<sup>3</sup>. Die Kristallinität beträgt 59%, wobei der Kristallschmelzpunkt nach DSC-Messungen bei 259°C liegt.

Der Kristallisationstemperaturbereich  $T_c$  liegt zwischen 83°C und 258°C, wobei die Nachkristallisationstemperatur (auch Kaltkristallisationstemperatur)  $T_{CN}$  bei 144°C liegt. Die Polydispersität  $M_w/M_n$  des Polyethylenterephthalats beträgt 2,14.

Die Glasübergangstemperatur liegt bei 83°C.

Vor der Coextrusion werden das Polyethylenterephthalat für die Kernschicht und das hydrolyse-stabilisierte Polyethylenterephthalat für die Deckschichten 5 Stunden bei 170°C im Trockner getrocknet und dann durch eine Breitschlitzdüse auf einen Glättkalandar, dessen Walzen S-förmig angeordnet sind, coextrudiert und zu einer dreischichtigen 4 mm dicken Platte geglättet.

Die Extrusionstemperatur des Hauptextruders für die Kernschicht liegt bei 282°C. Die Extrusionstemperaturen der beiden Coextruder für die Deckschichten liegen bei 294°C. Die erste Kalandarwalze hat eine Temperatur von 65°C und die nachfolgenden Walzen haben jeweils eine Temperatur von 58°C. Die Geschwindigkeit des Abzuges liegt bei 4,2 m/min.

In Anschluß an die Nachkühlung wird die dreischichtige transparente Platte mit Trennsagen an den Rändern gesäumt, abgelängt und gestapelt.

Die erhaltene transparente, amorphe, dreischichtige PET-Platte hat folgendes Eigenschaftsprofil:

— Schichtaufbau: A—B—A

— Gesamtdicke: 4 mm

— Dicke der Kernschicht: 3,5 mm

— Dicke der Deckschichten: je 0,25 mm

— Oberflächenglanz 1. Seite: 191

— (Meßwinkel 200) 2. Seite: 189

— Lichttransmission: 93,0%

— Clarity (Klarheit): 100%

— Trübung: 0,7%

— Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine

(Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.)

— Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch

— Kristallinität: 0%

— Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>

— Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 139 J

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchte von 95% zeigt die PET-Platte folgende Eigenschaften:

— Oberflächenglanz 1. Seite: 173

— (Meßwinkel 200) 2. Seite: 169

— Lichttransmission: 91,8

— Clarity: 100%

— Trübung: 1,0

— Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine

- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>
- Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 118 J.

5

## Beispiel 2

Analog Beispiel 1 wird eine 4 mm dicke, transparente PET-Platte hergestellt. Die Kernschicht enthält 0,1 Gew.-% Antioxydans Irgafos 12 als Hydrolysestabilisator, wobei das Antioxydans bereits beim Rohstoffher-

10

steller zudosiert wurde. Die Deckschichten enthalten jeweils 1,0 Gew.-% Antioxydans Irgafos 12 und 2 Gew.-% des UV-Stabilisators 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxyphenol (\*Tinvin 1577 der Fa. Ciba Geigy). Die beiden Stabilisato-

ren werden direkt beim Rohstoffhersteller zu dem Polyethylenterephthalat dosiert.

Die erhaltene transparente PET-Platte hat folgendes Eigenschaftsprofil:

15

- Gesamtdicke: 4 mm
- Oberflächenglanz 1. Seite: 176
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 172
- Lichttransmission: 92,7%
- Clarity (Klarheit): 99,8%
- Trübung: 1,8%
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine (Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.)
- Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 132 J
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>

20

25

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C, einer relativen Luftfeuchte von 95% und nach 1000 Stunden Bewitterung pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometer zeigt die PET-Platte folgende Eigenschaften:

30

- Oberflächenglanz 1. Seite: 154
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 152
- Lichttransmission: 91,2%
- Clarity: 99,4%
- Trübung: 2,8%
- Gesamtverfärbung  $\Delta E$ : 0,24
- Dunkelverfärbung  $\Delta L$ : -0,19
- Rot-Grün-Verfärbung  $\Delta A$ : -0,08
- Blau-Gelb-Verfärbung  $\Delta B$ : 0,12
- Oberflächendefekte: keine (Risse, Versprödung)
- Gelbwert G: 4
- Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 121 J
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

35

40

45

## Beispiel 3

50

Es wird eine einschichtige 4 mm dicke, transparente Platte hergestellt, die als Hauptbestandteil Polyethylenterephthalat und 0,5 Gew.-% Antioxydans \*Irgafos 12 (Fa. Ciba Geigy) enthält.

Zur Gewährleistung einer homogenen Verteilung werden 0,5 Gew.-% des Antioxydans direkt beim Rohstoffher-

55

hersteller in das Polyethylenterephthalat eingearbeitet. Das eingesetzte Polyethylenterephthalat hat eine Standardviskosität SV (DCE) von 1010, was einer intrinsischen Viskosität IV (DCE) von 0,79 dl/g entspricht. Der Feuchtigkeitsgehalt liegt bei < 0,2% und die Dichte (DIN 53479) bei 1,41 g/cm<sup>3</sup>. Die Kristallinität beträgt 59%, wobei der Kristallitschmelzpunkt nach DSC-Messungen bei 258°C liegt.

60

Der Kristallisationstemperaturbereich  $T_c$  liegt zwischen 83°C und 258°C, wobei die Nachkristallisationstemperatur (auch Kaltkristallisationstemperatur)  $T_{CN}$  bei 144°C liegt. Die Polydispersität  $M_w/M_n$  des Polyethylenterephthalats beträgt 2,14.

Die Glasübergangstemperatur liegt bei 83°C.

Vor der Extrusion wird das Polyethylenterephthalat 5 Stunden bei 170°C in einem Trockner getrocknet und dann in einem Einschnckenextruder bei einer Extrusionstemperatur von 286°C durch eine Breitschlitzdüse auf einen Glättkalander, dessen Walzen S-förmig angeordnet sind, extrudiert und zu einer 4 mm dicken Platte geglättet. Die erste Kalandervalze hat eine Temperatur von 65°C und die nachfolgenden Walzen haben jeweils eine Temperatur von 58°C.

65

Im Anschluß an die Nachkühlung wird die transparente, 4 mm dicke PET-Platte mit Trennsägen an den Rändern gesäumt, abgelängert und gestapelt.

Die erhaltene transparente, amorphe PET-Platte hat folgendes Eigenschaftsprofil:

- Dicke: 4 mm 5
- Oberflächenglanz 1. Seite: 198
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 196
- Lichttransmission: 92%
- Clarity (Bildschärfe): 100%
- Trübung: 0,5% 10
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine  
(Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.)
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut, keine Defekte
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 136 J 15
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95% zeigt die einschichtige PET-Platte folgende Eigenschaften: 20

- Oberflächenglanz 1. Seite: 182
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 180
- Lichttransmission: 90,5%
- Clarity (Bildschärfe): 99% 25
- Trübung: 0,9%
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut, keine Defekte
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 128 J 30
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

#### Beispiel 4

Analog Beispiel 3 wird eine 4 mm dicke, transparente PET-Platte hergestellt, wobei das Antioxydans <sup>®</sup>Irgafos 12 in Form eines Masterbatches zudosiert wird. Das Masterbatch setzt sich aus 5 Gew.-% <sup>®</sup>Irgafos 1 2 als Wirkstoffkomponente und 95 Gew.-% des Polyethylenterephthalats aus Beispiel 3 zusammen. 35

Vor der Extrusion werden 90 Gew.-% des Polyethylenterephthalats aus Beispiel 3 mit 10 Gew.-% des Masterbatches 5 Stunden bei 170°C getrocknet. Die Extrusion und Plattenherstellung erfolgt analog zu Beispiel 3. 40

Die erhaltene transparente, amorphe PET-Platte hat folgendes Eigenschaftsprofil:

- Dicke: 4 mm
- Oberflächenglanz 1. Seite: 192 45
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 191
- Lichttransmission: 91,3%
- Clarity: 100%
- Trübung: 0,6%
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine  
(Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.) 50
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 133 J
- Kaltformbarkeit: gut
- Kristallinität: 0% 55
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95% zeigt die einschichtige PET-Platte folgende Eigenschaften: 60

- Oberflächenglanz 1. Seite: 179
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 178
- Lichttransmission: 90,2%
- Clarity (Bildschärfe): 99,2%
- Trübung: 1,0% 65
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut

- Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 128 J
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

5

## Beispiel 5

Analog Beispiel 3 wird eine 4 mm dicke, transparente PET-Platte hergestellt. Die einschichtige PET-Platte enthält 0,5 Gew.-% Antioxydants <sup>®</sup>Irgafos 12 (Fa. Ciba Geigy) und 1,5 Gew.-% des UV-Stabilisators 2-(4,6-Di-

10 phenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxyphenol (<sup>®</sup>Tinuvin 1577 der Firma Ciba-Geigy).  
 Tinuvin 1577 hat einen Schmelzpunkt von 149°C und ist bis ca. 330°C thermisch stabil. Die Stabilisatoren werden beim Rohstoffhersteller zudosiert.

Die erhaltene transparente, amorphe PET-Platte hat folgende Eigenschaften:

- Dicke: 4 mm
- 15 — Oberflächenglanz 1. Seite: 183
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 180
- Lichttransmission: 90,1%
- Clarity (Bildschärfe): 99,0%
- Trübung: 1,4%
- 20 — Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine  
 (Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.)
- Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 140 J
- Kaltformbarkeit: gut
- 25 — Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95% und nach 1000 Stunden Bewitterung pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometer  
 30 zeigt die PET-Platte folgende Eigenschaften:

- Oberflächenglanz 1. Seite: 171
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 169
- Lichttransmission: 89,1%
- 35 — Clarity (Bildschärfe): 97%
- Trübung: 2,6%
- Gesamtverfärbung  $\Delta E$ : 0,22
- Dunkelverfärbung  $\Delta L$ : -0,18
- Rot-Grün-Verfärbung  $\Delta A$ : -0,08
- 40 — Blau-Gelb-Verfärbung  $\Delta B$ : 0,10
- Oberflächendefekte: keine  
 (Risse, Versprödung)
- Schlagzähigkeit  $a_n$  nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut
- 45 — Schädigungsenergie  $W_s$  bei 23°C: 119 J
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

## Beispiel 6

50

Analog Beispiel 5 wird eine 4 mm dicke, weiße, amorphe PET-Platte hergestellt. Die Platte enthält neben den beiden Stabilisatoren <sup>®</sup>Tinuvin 1577 und Irgafos 12 6 Gew.-% Titandioxid als Farbmittel.

Das Titandioxid ist vom Rutiltyp und mit einer anorganischen Beschichtung aus Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und mit einer organischen Beschichtung aus Polydimethylsiloxan gecoatet. Das Titandioxid hat einen mittleren Teilchendurchmesser  
 55 von 0,2 µm.

Das Titandioxid wird in Form eines Masterbatches zugegeben. Das Masterbatch setzt sich aus 30 Gew.-% des beschriebenen Titandioxides als Wirkstoffkomponente und 70 Gew.-% des beschriebenen Polyethylenterephthalats als Trägermaterial zusammen.

Vor der Extrusion werden 80 Gew.-% des mit 1,5 Gew.-% Tinuvin 1577 und 0,5 Gew.-% Irgafos 12 ausgerüsteten Polyethylenterephthalats und 20 Gew.-% des Titandioxid-Masterbatches 5 Stunden bei 170°C in einem Trockner getrocknet.

Die Extrusion und die Plattenherstellung erfolgt analog zu Beispiel 3.

Die erhaltene, weiß eingefärbte Platte zeigt folgende Eigenschaften:

- 65 — Dicke: 4 mm
- Oberflächenglanz 1. Seite: 128
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 127
- Lichttransmission: 0%

- Weißgrad: 116
- Einfärbung: weiß, homogen
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine  
(Stippen, Orangenhaut, Blasen usw.)
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut
- Kristallinität: 0%
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 143 J.

5

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95% und nach 1000 Stunden Bewitterung pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometar zeigt die weiße PET-Platte folgende Eigenschaften:

- Oberflächenglanz 1. Seite: 120
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 117
- Lichttransmission: 0%
- Weißgrad: 108%
- Einfärbung: weiß, homogen
- Oberflächendefekte: keine  
(Risse, Versprödung)
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Kaltformbarkeit: gut
- Kristallinität: 0%
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 126 J.

15

20

25

#### Vergleichsbeispiel 1

Analog Beispiel 1 wird nach dem Coextrusionsverfahren eine 4 mm dicke, mehrschichtige, transparente, amorphe PET-Platte mit der Schichtfolge A—B—A hergestellt. Die Platte enthält kein Antioxydans. Die erhaltene transparente, amorphe, dreischichtige PET-Platte hat folgendes Eigenschaftsprofil:

30

- Schichtaufbau: A—B—A
- Dicke der Deckschichten: je 0,25 mm
- Dicke der Basisschichten: 3,5 mm
- Gesamtdicke: 4 mm
- Oberflächenglanz 1. Seite: 195
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 193
- Lichttransmission: 93%
- Clarity (Klarheit): 99,6%
- Trübung: 0,6%
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 138 J
- Kaltformbarkeit: gut
- Kristallinität: 0%
- Dichte 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

35

40

45

Nach 1000 Stunden Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95% und nach 1000 Stunden Bewitterung pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometar zeigt die PET-Platte folgende Eigenschaften:

50

- Oberflächenglanz 1. Seite: 94
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 92
- Lichttransmission: 71,2%
- Clarity: 80,4%
- Trübung: 8,4%
- Gesamtverfärbung ΔE: 3,71
- Dunkelverfärbung ΔL: -0,31
- Rot-Grün-Verfärbung ΔA: -0,87
- Blau-Gelb-Verfärbung ΔB: +3,59
- Oberflächendefekte: Versprödung
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: Sprödbbruch
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 4 J
- Kaltformbarkeit: Ribbildung
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

55

60

65

## Vergleichsbeispiel 2

Analog Beispiel 5 wird eine 4 mm dicke, transparente PET-Platte hergestellt. Die Platte enthält kein Antioxyd-  
ans und keinen UV-Stabilisator. Die erhaltene transparente, amorphe, einschichtige PET-Platte hat folgendes  
Eigenschaftsprofil:

- Dicke: 4 mm
- Oberflächenglanz 1. Seite: 195
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 192
- Lichttransmission: 92,5%
- Clarity (Bildschärfe): 100%
- Trübung: 0,4%
- Oberflächendefekte pro m<sup>2</sup>: keine
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: kein Bruch
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 138 J
- Kaltformbarkeit: gut
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>.

Nach 1000 h Lagerung in einem Trockenschrank bei einer Temperatur von 50°C, einer relativen Luftfeuchte  
von 95% und nach 1000 h Bewitterung pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometer zeigt die PET-Platte  
folgende Eigenschaften:

- Oberflächenglanz 1. Seite: 94
- (Meßwinkel 200) 2. Seite: 92
- Lichttransmission: 71,2%
- Clarity: 80,4%
- Trübung: 8,4%
- Gesamtverfärbung ΔE: 3,71
- Dunkelverfärbung ΔL: -0,31
- Rot-Grün-Verfärbung ΔA: -0,87
- Blau-Gelb-Verfärbung ΔB: +3,59
- Oberflächendefekte: Versprödung
- Schlagzähigkeit a<sub>n</sub> nach Charpy: Sprödebruch
- Schädigungsenergie W<sub>s</sub> bei 23°C: 4 J
- Kaltformbarkeit: Ribbildung
- Kristallinität: 0%
- Dichte: 1,33 g/cm<sup>3</sup>

## Patentansprüche

1. Amorphe Platte mit einer Dicke im Bereich von 0,8 bis 20 mm, die ein kristallisierbares Polyethylenterephthalat als Hauptbestandteil und mindestens ein Antioxydant enthält.
2. Platte nach Anspruch 1, wobei das Antioxydant in einer Konzentration von 0,1 bis 6 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des Polyethylenterephthalats in der Platte, vorliegt.
3. Platte nach Anspruch 1 oder 2, wobei das mindestens eine Antioxydant ausgewählt ist unter sterisch gehinderten Phenolen, sekundären, aromatischen Aminen, Phosphiten, Phosphoniten, Thioether, Carbondümmiden und Zinkdibutyldithiocarbamat.
4. Platte nach Anspruch 3, wobei das Antioxydant 2-[(2,4,8,10-Tetrakis(1,1-dimethylethyl)dibenzo[d,f][1,3,2]dioxaphosphin-6-yl)oxy]ethylethanamin und/oder Tris-(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit ist.
5. Platte nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Platte mindestens einen UV-Stabilisator enthält.
6. Platte gemäß Anspruch 5, wobei die Konzentration des UV-Stabilisators im Bereich von 0,01 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des kristallisierbaren Thermoplasten, liegt.
7. Platte gemäß Anspruch 5 oder 6, wobei der UV-Stabilisator ausgewählt wird unter 2-Hydroxybenzotriazole und Triazinen.
8. Platte gemäß Anspruch 7, wobei der UV-Stabilisator ausgewählt wird unter 2-(4,6-Diphenyl-1,35-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol und 2,2'-Methylenbis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-phenol).
9. Platte nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Platte mindestens ein Farbmittel enthält.
10. Platte nach Anspruch 9, wobei das Farbmittel ausgewählt ist unter Farbstoffen und Pigmenten.
11. Platte nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Platte mindestens einseitig eine kratzfeste Beschichtung aufweist.
12. Platte nach Anspruch 11, wobei die kratzfeste Beschichtung siliciumund/oder acrylhaltig ist.
13. Platte nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Platte eine mehrschichtige Struktur mit mindestens einer Deckschicht und mindestens einer Kernschicht aufweist.
14. Platte nach Anspruch 13, wobei die Standardviskosität des Polyethylenterephthalats in der Kernschicht größer ist als die des Polyethylenterephthalats in der angrenzenden Deckschicht.

15. Platte nach Anspruch 13 oder 14, wobei die Platte eine mehrschichtige Struktur mit zwei Deckschichten und einer zwischen den Deckschichten liegenden Kernschicht aufweist.
16. Platte nach einem der Ansprüche 13 bis 15, wobei das mindestens eine Antioxydans in der Deckschicht enthalten ist.
17. Platte nach einem der Ansprüche 13 bis 16, wobei der mindestens eine UV-Stabilisator in der Deckschicht enthalten ist. 5
18. Verfahren zur Herstellung einer einschichtigen, amorphen Platte nach einem der Ansprüche 1 bis 12, wobei das Polyethylenterephthalat in einem Extruder zusammen mit dem mindestens einem Antioxydans aufgeschmolzen wird, die Schmelze durch eine Düse ausgeformt wird und anschließend die erhaltene Platte im Glättwerk mit mindestens zwei Walzen kalibriert, geglättet und gekühlt wird, wobei die erste Walze des Glättwerkes eine Temperatur im Bereich von 50 bis 80°C hat. 10
19. Verfahren zur Herstellung einer mehrschichtigen amorphen Platte nach einem der Ansprüche 13 bis 17, wobei das Polyethylenterephthalat für die mindestens eine Kernschicht und das Polyethylenterephthalat für die mindestens eine Deckschicht zusammen mit dem mindestens einem Antioxydans in einem Coextruder aufgeschmolzen werden, die Schmelzen übereinander geschichtet und die zusammengeführten Schichten durch eine Düse ausgeformt und anschließend im Glättwerk mit mindestens zwei Walzen kalibriert, geglättet und gekühlt werden, wobei die Temperatur der ersten Walze des Glättwerkes in einem Bereich von 50 bis 80°C liegt. 15
20. Verfahren nach einem der Ansprüche 18 oder 19, wobei das Polyethylenterephthalat vor der Extrusion für 4 bis 6 Stunden bei einer Temperatur im Bereich von 160 bis 180°C vorgetrocknet wird. 20
21. Verfahren nach einem der Ansprüche 18 bis 20, wobei die Temperatur der Polyethylenterephthalatschmelze im Bereich von 250 bis 320°C liegt.
22. Verfahren nach einem der Ansprüche 18 bis 21, wobei die Additive ausgewählt unter Antioxydantien, UV-Stabilisatoren und Farbmittel über die Masterbatchtechnologie zugeführt werden.
23. Verwendung einer amorphen Platte nach einem der Ansprüche 1 bis 16 im Außen- und Innenbereich. 25

30

35

40

45

50

55

60

65

- Leerseite -